

99P3269



19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

12 Patentschrift  
10 DE 42 01 841 C 1

51 Int. Cl.  
B 01 D 1/00  
C 02 F 1/04  
G 21 F 9/08

21 Aktenzeichen: P 42 01 841.2-44  
22 Anmeldetag: 24. 1. 92  
43 Offenlegungstag: —  
45 Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung: 24. 6. 93

DE 42 01 841 C 1

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

73 Patentinhaber:

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, 7500  
Karlsruhe, DE

72 Erfinder:

Kunze, Siegm, 7562 Gernsbach, DE; Gompper,  
Klaus, Dr., 7513 Stutensee, DE; Köster, Rainer, Dr.,  
7500 Karlsruhe, DE; Lösch, Günter, 6729  
Leimersheim, DE; Walschburger, Cornelia, 7500  
Karlsruhe, DE

56 Für die Beurteilung der Patentfähigkeit  
in Betracht gezogene Druckschriften:

DE-PS 17 67 184  
GMELIN: Handbuch der Anorganischen Chemie, 8.  
Aufl. Bd. 28, Teil 7, S. 126-132(1975);

54 Verfahren zum Eindampfen

- 57 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Eindampfen einer wäßrigen, konzentrierten salzhaltigen Lösung oder Suspension. Bei einem solchen Verfahren soll das Verspritzen der Lösung oder Suspension verringert oder verhindert werden. Erfindungsgemäß wird vorgeschlagen, der Lösung oder Suspension vor dem Eindampfen Borax zuzugeben.

DE 42 01 841 C 1

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Eindampfen einer wäßrigen, konzentrierten salzhaltigen Lösung oder Suspension.

Unter Eindampfen soll das Austreiben von Wasser aus der Lösung oder Suspension bei erhöhter Temperatur bis zum Erhalt eines Kristallbreis oder trockenen Produkts verstanden werden. Unter vermindertem Druck kann das Eindampfen bei entsprechend verminderter Temperatur durchgeführt werden.

Im Labor und in der Technik stellt sich häufig die Aufgabe, wäßrige, konzentrierte salzhaltige Lösungen oder Suspensionen einzudampfen.

In G. Jander, E. Blasius, Lehrbuch der analytischen und präparativen anorganischen Chemie, 6. Auflage, S. Hirzel Verlag Stuttgart (1966) wird in den allgemeinen Arbeitsgrundlagen auf Seite 72 auf mögliche Gefahren beim Eindampfen hingewiesen: "Besondere Vorsicht beim Eindampfen ist geboten, wenn sich ein fester Körper ausscheidet. Dabei tritt leicht starkes Spritzen ein."

Das Spritzen in der letzten Phase der Trocknung, d. h. bei Übergang von konzentrierter Salzlösung zum Kristallbrei oder trockenen Produkt stellt nicht nur ein Sicherheitsrisiko dar, sondern führt zu starken Ablagerungen und Verkrustungen im Oberteil des Eindampfgefäßes und gegebenenfalls in angeschlossene Abgas- oder Absaugleitungen bis zum Verstopfen dieser Leitungen. Naturgemäß ist das Spritzen insbesondere dann äußerst unerwünscht, wenn es sich bei den Lösungen oder Suspensionen um Lösungen toxischer oder radioaktiver Abfallsalze handelt, da dann auch die Gefahr einer Kontamination besteht.

Es sind verschiedenen Versuche gemacht worden, das Spritzen beim Eindampfen von Lösungen oder Suspensionen durch kontinuierliches Rühren, Verwendung von mechanischen Abscheidern, Prallblechen etc. oder durch Zusatz von oberflächenaktiven Substanzen unter Kontrolle zu bringen. Diesen Versuchen war nur ein mäßiger Erfolg beschieden. Kontinuierliches Rühren erfordert einen hohen apparativen Aufwand, insbesondere, wenn bei Unterdruck gearbeitet werden soll. Prallbleche bewirken eine unzureichende Abscheidung der verspritzten Tröpfchen. Die Wirkung von oberflächenaktiven Substanzen ist nur begrenzt.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, das Spritzen beim Eindampfen oder Trocknen von wäßrigen, konzentrierten salzhaltigen Lösungen oder Suspensionen zu vermindern, oder zumindest stark zu vermindern, ohne daß mechanisch wirkende Elemente verwendet werden.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß zur Verhinderung und/oder Verminderung des Spritzens beim Eindampfvorgang der Lösung oder Suspension vor dem Eindampfen Borax in einer Menge von 5 bis 30 g pro Liter Lösung oder Suspension zugegeben wird und daß das Eindampfen bei einer Temperatur zwischen 70 und 150°C durchgeführt wird. Vorteilhafte Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens sind in den abhängigen Patentansprüchen beschrieben.

Es ist zwar aus der DE-PS 17 67 184 bekannt, radioaktiven borhaltigen Abwässern Natriumhydroxid zuzusetzen, wonach Bor als Natriumborat vorliegt, und diese Abwasser so weit einzuengen, bis das verbleibende Wasser durch Kühlungskristallisation als Kristallwasser des Natriumborats gebunden wird.

Der Fachmann kann dieser Druckschrift jedoch nicht entnehmen, daß der erfindungsgemäße Zusatz von Borax generell das Spritzen beim Eindampfen verringert oder ganz verhindert.

Das Spritzen beim Eindampfen oder Trocknen von Lösungen oder Suspensionen kann durch Zusatz von Borax erheblich reduziert werden. Bevorzugt wird, unterhalb einer Temperatur von 100°C zu arbeiten und die Lösung oder Suspension unter Unterdruck zu halten. Als besonders günstig erweist es sich, bei ca. 80°C und ca. 200 mbar einzudampfen.

Vorzugsweise wird Borax in einer Menge von 7,5 bis 10 g pro Liter einzudampfender Lösung oder Suspension eingesetzt. Höhere Mengen als 30 g/l sind unnötig.

Die errechnete Menge an Borax kann sowohl bei chargenweisem wie auch bei kontinuierlichem Betrieb vor Beginn des Eindampfens im Eindampfgefäß vorgelegt werden. Es ist jedoch gleichermaßen möglich, der Lösung oder Suspension bereits im Lager- oder Vorratsbehälter Borax zuzusetzen.

Enthält die Lösung oder Suspension radioaktive Abfallsalze, so wird das Eindampfen vorzugsweise in endlagerfähigen Behältern oder Abschirmbehältern, etwa solchen aus Gußeisen, durchgeführt.

Die Wirkungsweise von Borax beim Eindampfen von Lösungen oder Suspensionen konnte noch nicht völlig aufgeklärt werden. Eine entscheidende Rolle spielte vermutlich die Freisetzung von Kristallwasser während des Eindampfens.

Aus dem Gmelin Handbuch, 8. Auflage, Band 28, Teil 7 (1975) Seiten 126—132, geht hervor, daß beim Temperieren einer wäßrigen Lösung von Borax auf ca. 80°C stark hygroskopisches Tinalconit entsteht:



Borax  
Ketten aus regelmäßig  
angeordneten Oktaedern

Tinalconit  
verzernte Ketten, metastabil,  
sehr hygroskopisch

Möglicherweise bindet das sehr hygroskopische Zwischenprodukt Ticalconit vorübergehend das in der letzten Phase des Eindampfens oder Trocknens, d. h., beim Übergang von konzentrierter Lösung oder Suspension zu Kristallbrei, freiwerdende Wasser und gibt es im konkreten Verlauf des Trocknens wieder ab. Dieser Mechanismus könnte die deutliche Verringerung des Spritzens bereits nach Zugabe geringer Mengen Borax zur konzentrierten Lösung oder Suspension erklären.

Ein wesentlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß auf konstruktive Maßnahmen

an der einzusetzenden Vorrichtung, die den Zweck haben, das Spritzen beim Eindampfen zu verhindern, weitgehend oder vollständig verzichtet werden kann. Borax ist eine sehr billige und ungiftige Chemikalie und wirkt bereits in geringen Mengen. Die Verfahrensführung beim Eindampfen braucht nicht verändert zu werden. Das Oberteil des Eindampfgefäßes und eventuell angeschlossene Abgas- oder Absaugleitungen bleiben zumindest weitgehend frei von Ablagerungen.

Weitere Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens ergeben sich, wenn die wäßrigen, konzentrierten, salzhaltigen Lösungen oder Suspensionen radioaktive Abfallösungen darstellen. Solche Lösungen wurden bisher überwiegend durch Zementierung in eine feste Form gebracht, wobei sich das Volumen beträchtlich erhöht. Da aber in vielen Ländern, etwa in Deutschland, kein Endlager zur sofortigen Einlagerung zur Verfügung steht, müssen die Zementgebiete auf unbestimmte Zeit zwischengelagert werden. Der Raumbedarf für die Zwischen- und Endlagerung kann beträchtlich reduziert werden, wenn das Eindampfen solcher Abfallösungen in endlagerfähigen Abschirmbehältern, etwa aus Gußeisen, durchgeführt und der Trockenrückstand in diesen Behältern gelagert wird. Beim erfindungsgemäßen Verfahren verbleibt das trockene Produkt im Eindampfgefäß und wird nicht durch verspritzende Tröpfchen in andere Anlagenteile transportiert.

Die Erfindung wird im folgenden anhand von Durchführungsbeispielen näher erläutert.

Versuche wurden mit zwei Lösungen durchgeführt, die der Zusammensetzung von konzentrierten radioaktiven Abfallösungen mittlerer Aktivität (MAWC, Medium Active Waste Concentrate) entsprach. Diese Lösungen enthielten als Hauptbestandteil Natriumnitrat, daneben Nitrate von Aluminium, Calcium, Magnesium, Eisen, Zinn etc. sowie organische Komplexbildner wie EDTA, Tartrate, Citrate, Oxalate, Tributylphosphat, Dibutylphosphat und Kerosin. Der Anteil der gelösten Salze betrug in einem Fall ca. 350 g/l, im andern Fall ca. 130 g/l.

Die verwendete Vorrichtung bestand im wesentlichen aus einem geschlossenen Eindampfgefäß mit 1,5 l Fassungsvermögen, einem Vorlagetank, in dem die Lösungen auf einen pH von 9 eingestellt wurden und Borax beigemischt wurde und aus einer Abgasstrecke mit angeschlossener Vakuumpumpe.

Das Eindampfgefäß wurde durch ein Tauchbad beheizt. Durch Thermoelemente wurde die Temperatur der Lösung oder Suspension bzw. des trockenen Produkts im Eindampfgefäß bestimmt.

Die Eindampfversuche wurden bei ca. 80°C und einem Druck von ca. 200 mbar durchgeführt. Das trockene Produkt wurde anschließend auf ca. 150°C aufgeheizt.

Ohne Zusatz von Borax war das Spritzen in der letzten Phase der Trocknung beim Übergang von konzentrierter Suspension zu Kristallbrei bzw. trockenem Produkt so stark, daß Ablagerungen in der Abgasstrecke auftraten. Dabei spielte keine Rolle, ob die gesamte Lösung im Eindampfgefäß vorgelegt wurde oder ob die Lösung kontinuierlich in das Eindampfgefäß eingeleitet wurde.

Bereits ein Anteil von 5 g/l Borax in der verwendeten Lösung reduzierte das Spritzen beim Eindampfen sehr stark. Äußerst gering war das Spritzen bei Boraxzusätzen ab 7,5 g/l. Ablagerungen in der Abgasstrecke der Versuchsanlage traten bei Zusatz von Borax zur Lösung nicht auf.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zum Eindampfen einer wäßrigen, konzentrierten salzhaltigen Lösung oder Suspension, dadurch gekennzeichnet, daß zur Verhinderung und/oder Verminderung des Spritzens beim Eindampfvorgang der Lösung oder Suspension vor dem Eindampfen Borax in einer Menge von 5 bis 30 g pro Liter Lösung oder Suspension zugegeben wird und daß das Eindampfen bei einer Temperatur zwischen 70 und 150°C durchgeführt wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Eindampfen bei reduziertem Druck durchgeführt wird.

3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Lösung oder Suspension radioaktive Abfallsalze enthält.

4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Eindampfen in endlagerfähigen Behältern durchgeführt wird.

5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß Behälter aus Gußeisen eingesetzt werden.

- Leerseite -

DOCKET NO: TER-99P3269P  
SERIAL NO: \_\_\_\_\_  
APPLICANT: Gerhard Länger

LERNER AND GREENBERG P.A.  
P.O. BOX 2480  
HOLLYWOOD, FLORIDA 33022  
TEL. (954) 925-1100